

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **05193908 A**

(43) Date of publication of application: **03.08.93**

(51) Int. Cl

C01B 13/32

C01B 33/18

C01F 5/04

C01F 7/42

(21) Application number: **04007903**

(22) Date of filing: **20.01.92**

(71) Applicant:

**TOYOTA MOTOR CORP SHIN
ETSU CHEM CO LTD**

(72) Inventor:

**KAMIYA SUMIO
TANAKA HIDEJI
ABE SAN**

(54) PRODUCTION OF METAL OXIDE POWDER

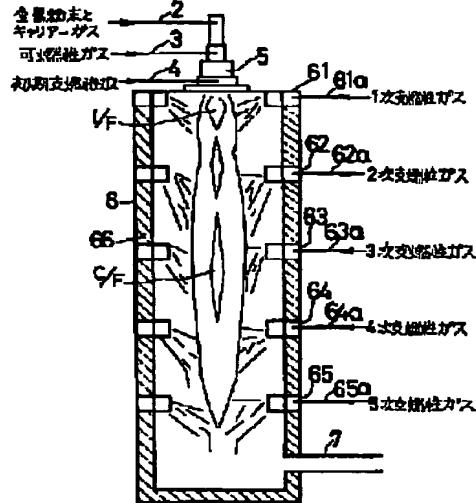
is raised.

(57) Abstract:

COPYRIGHT: (C)1993,JPO&Japio

PURPOSE: To independently control the particle diameter of a metal oxide powder to be produced over a wide range by controlling the supply of a combustion supporting gas in multiple stages to expand or contract the combustion flame.

CONSTITUTION: A combustible gas and an initial combustion supporting gas (oxygen) are supplied to a metal powder burner 5 to form an ignition flame, and a metal powder dispersed in a carrier gas is introduced into the ignition flame to form an initial flame I/F close to the burner 5. A combustion supporting gas is then introduced from feed pipes 61a,...65a to form a successive and multistage combustion flame C/F in the extending direction of the initial flame I/F. In this case, the supply and flow rate of the combustion supporting gas from the feed pipes 61a,...65a are controlled to expand or contract the combustion flame, and the particle diameter of the metal oxide powder to be produced is controlled. The particle diameter of the powder is increased as the formed combustion flame is increased in length, and the particle diameter of the powder is increased as the temp. of the combustion flame



4

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-193908

(43)公開日 平成5年(1993)8月3日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	府内整理番号	F I	技術表示箇所
C 01 B 13/32		8516-4G		
33/18	Z	7038-4G		
C 01 F 5/04		9040-4G		
7/42		9040-4G		

審査請求 未請求 請求項の数1(全10頁)

(21)出願番号	特願平4-7903	(71)出願人	000003207 トヨタ自動車株式会社 愛知県豊田市トヨタ町1番地
(22)出願日	平成4年(1992)1月20日	(71)出願人	000002060 信越化学工業株式会社 東京都千代田区大手町二丁目6番1号
		(72)発明者	神谷 純生 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内
		(72)発明者	田中 秀二 新潟県中頸城郡頸城村大字西福島28の1 信越化学工業株式会社合成技術研究所内
		(74)代理人	弁理士 大川 宏

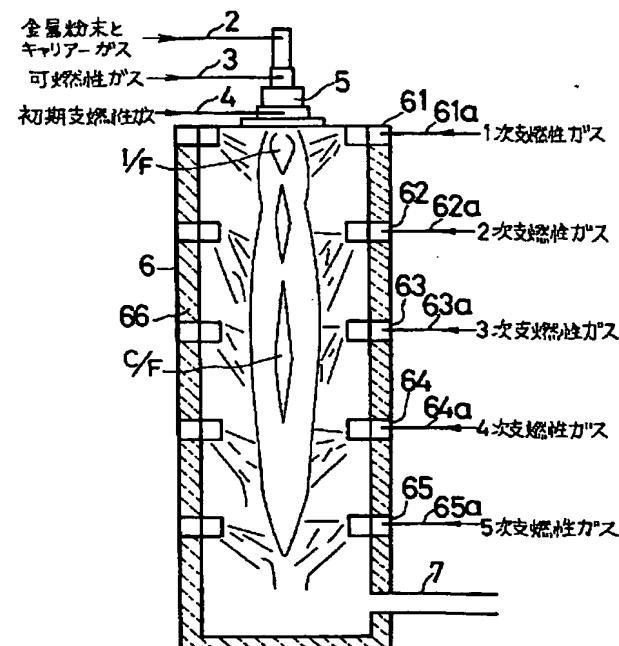
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 金属酸化物粉末の製造方法

(57)【要約】 (修正有)

【目的】 製造される金属酸化物粉末の粒径を広い範囲にわたって、単独で制御することができる金属酸化物粉末の製造方法を提供する。

【構成】 酸素含有雰囲気中で金属粉末に着火し、燃焼火炎C/Fを形成し、金属粉末を連続的に酸化燃焼させる金属酸化物粉末の製造方法において、金属粉末をキャリアーガス中に分散させる工程と、金属粉末燃焼用バーナ5によって、可燃性ガスと初期支燃性ガスから着火用火炎を形成する工程と、着火用火炎中に金属粉末を分散させたキャリアーガスを導入し、金属粉末燃焼用バーナ5付近で初期火炎I/Fを形成する工程と、初期火炎I/Fが延長する方向に、逐次的かつ多段階的燃焼火炎C/Fを形成する工程とを行い、支燃性ガスの供給を制御することによって燃焼火炎C/Fを拡大または縮小し、製造される金属酸化物粉末の粒径を制御することを特徴とする金属酸化物粉末の製造方法。



【特許請求の範囲】

【請求項1】酸素含有雰囲気中で金属粉末に着火し、燃焼火炎を形成し、該金属粉末を連続的に酸化燃焼させる金属酸化物粉末の製造方法において、

前記金属粉末をキャリアーガス中に分散させる工程と、金属粉末燃焼用バーナによって、可燃性ガスと初期支燃性ガスから着火用火炎を形成する工程と、

前記金属粉末を分散させた前記キャリアーガスを、前記着火用火炎中に導入し、前記金属粉末燃焼用バーナ付近で初期火炎を形成する工程と、

前記初期火炎が延長する方向に支燃性ガスを逐次的かつ多段階的に供給して前記燃焼火炎を形成する工程とを行い、

前記支燃性ガスの供給を制御することによって前記燃焼火炎を拡大または縮小し、製造される金属酸化物粉末の粒径を制御することを特徴とする金属酸化物粉末の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、金属酸化物粉末の製造方法に関する。詳しくは、製造される金属酸化物粉末の粒径を広い範囲にわたって制御することを可能にする金属酸化物粉末の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】金属酸化物粉末の製造方法として、従来から、連続粉塵爆発の原理を応用した金属酸化物粉末の製造方法が知られている。この製造方法によって製造された金属酸化物粉末は、ゾル・ゲル法、水ガラス法、火炎加水分解法などによって製造された金属酸化物粉末とは異なり、比較的広範囲な粒度分布をもつ一次真球状微粒子で充填率が高くできるため、半導体封止材の原料、セラミックスの原料、化粧品の原料などの広い分野で利用されている。

【0003】たとえば、特開昭60-255602号公報に開示されているように、この金属酸化物粉末の製造方法は、酸素含有雰囲気中で金属粉末に着火し、燃焼火炎を形成し、金属粉末を連続的に酸化燃焼させるものである。すなわち、まず金属粉末をキャリアーガス中に分散させ、金属粉末を分散させたキャリアーガスを燃焼炉へ供給する。そして、酸素含有雰囲気中で金属粉末に着火し、燃焼火炎を形成し、金属粉末を連続的に酸化燃焼させる。すると、金属粉末の一部は、燃焼火炎中でプラズマ化する。プラズマ化した金属粉末は、冷却されると直ちに金属酸化物粉末となる。最後に、このようにして得られた金属酸化物粉末を含む排気ガスから、濾布集塵装置などを用いて金属酸化物粉末を分離、回収する。

【0004】このような金属酸化物粉末の製造方法によって製造されている金属酸化物粉末に、シリカガラス粉末がある。このシリカガラス粉末の用途の一つとして、半導体封止材の原料に応用することが考えられる。しか

し、半導体封止材の原料としてシリカガラス粉末を利用するためには、シリカガラス粉末は高い純度と広い範囲にわたる粒径をもつものでなければならない。この要求を満たすため、以下のような提案がこれまでになされている。

【0005】前記した特開昭60-255602号公報には、燃焼炉を延長して粒成長時間を長くし、かつ、金属が燃焼火炎中で液体状態を保つように外部から燃焼炉を加熱して、金属酸化物粉末の粒径を拡大する方法が記載されている。また、特開昭64-24004号公報に記載の方法は、まず、金属粉末と金属酸化物粉末の混合物をキャリアーガスとともに燃焼火炎中に供給し、燃焼させて、金属酸化物粉末を得る。この後、得られた金属酸化物粉末を循環させて、再度、金属粉末と混合し、混合物をキャリアーガスとともに燃焼火炎中に供給し、燃焼させて、粒成長させる。そして、このような操作を所定の粒径の金属酸化物粉末が得られるまで繰り返して、金属酸化物粉末の粒径を拡大するものである。なお、特開昭64-79001号公報には、金属粉末の混合物を

20 キャリアーガスとともに燃焼火炎中に供給し、燃焼させて、複合金属酸化物粉末を得るという、特開昭64-24004号公報に記載の方法と類似の方法が記載されている。

【0006】さらに、特開昭63-252910号公報、特開昭64-79004号公報や特開昭64-79005号公報には、製造される金属酸化物粉末の粒径を縮小する方法または装置が開示されている。特開昭63-252910号公報に記載の方法においては、金属粉末がキャリアーガスとともに導入された燃焼火炎の外周に冷却ガスを供給している。この冷却ガスの供給によって、金属酸化物粉末の粒成長を阻止し、製造される金属酸化物粉末の粒径を縮小している。

【0007】同様に、特開昭64-79004号公報に記載の装置においては、金属粉末をキャリアーガスとともに導入し燃焼火炎を形成する燃焼炉内に、冷却水を噴出している。この冷却水の噴出によって、金属酸化物粉末の粒成長を阻止し、製造される金属酸化物粉末の粒径を縮小している。また、特開昭64-79005号公報に記載の方法においては、金属粉末に加えて微細化助材40をキャリアーガスとともに、燃焼火炎に導入している。この微細化助材は、燃焼火炎中で吸熱反応するもの、または、分解反応によって気体を発生するものである。この微細化助材は、燃焼火炎の温度を低下、または、金属酸化物の濃度を低下させる。微細化助材のかかる作用によって、金属酸化物粉末の粒成長を阻止し、製造される金属酸化物粉末の粒径を縮小している。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】特開昭60-255602号公報や特開昭64-24004号公報に記載の方法によって、金属酸化物粉末の粒径を拡大する場合、燃

焼炉の構造を大幅に改造しなければならない、また、これに伴って燃焼炉に付帯する設備も改造、増加しなければならない。このため、金属酸化物の製造工程が複雑となり、生産性が低下してしまうという問題がある。

【0009】特開昭63-252910号公報に記載の方法や特開昭64-79004号公報に記載の装置によって、製造される金属酸化物粉末の粒径を縮小する場合、製造された金属酸化物粉末に炭素繊維などの異物が混入し易い。このため、金属酸化物粉末の品質が劣化してしまうという問題がある。また、特開昭64-79005号公報に記載の方法によって、製造される金属酸化物粉末の粒径を縮小する場合、燃焼炉の構造を大幅に改造しなければならない、また、これに伴って燃焼炉に付帯する設備も改造、増加しなければならない。このため、金属酸化物の製造工程が複雑となり、生産性が低下してしまうという問題がある。

【0010】なお、従来の技術に関する以上の説明から明らかなように、従来の技術は、製造される金属酸化物粉末の粒径の拡大または縮小のいずれかを単独で実施するものである。すなわち、製造される金属酸化物粉末の粒径の拡大および縮小の双方を、単独の方法または装置で実施することを可能とする技術は、これまで提案されたことはなかった。

【0011】本発明は、前記した従来の技術の問題点を解決するものであり、製造される金属酸化物粉末の粒径を広い範囲にわたって、単独で制御することができる金属酸化物粉末の製造方法を提供することを目的とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】本発明は、酸素含有雰囲気中で金属粉末に着火し、燃焼火炎を形成し、該金属粉末を連続的に酸化燃焼させる金属酸化物粉末の製造方法において、前記金属粉末をキャリアーガス中に分散させる工程と、金属粉末燃焼用バーナによって、可燃性ガスと初期支燃性ガスから着火用火炎を形成する工程と、前記金属粉末を分散させた前記キャリアーガスを、前記着火用火炎中に導入し、前記金属粉末燃焼用バーナ付近で初期火炎を形成する工程と、前記初期火炎が延長する方向に支燃性ガスを逐次的かつ多段階的に供給して前記燃焼火炎を形成する工程とを行い、前記支燃性ガスの供給を制御することによって前記燃焼火炎を拡大または縮小し、製造される金属酸化物粉末の粒径を制御することを特徴とする。

【0013】本発明において使用する金属粉末は、珪素、アルミニウム、マグネシウム、チタン、ジルコニウムなどの金属粉末である。また、複合酸化物を構成するような金属粉末の混合物、たとえば、ムライトを構成するような組成の珪素粉末とアルミニウム粉末の混合物なども使用することができる。なお、高純度の金属酸化物粉末を得るためにには、前記したような各金属粉末の純度は、99.9%以上であるのが好ましい。さらに、金属

粉末の粒径は、爆燃を形成できる範囲の粒径分布にあればどのような粒径であってもよい。しかし、金属粉末の粒径は、400μm以下であることが好ましい。これ以上の粒径の粒子が金属粉末中に含まれると、かかる粒子を完全に酸化することができず、不完全に酸化された粒子が分離、回収された金属酸化物粉末中に含まれることになり、品質上好ましくない。なお、金属粉末の平均粒径は、数μmから数10μmの範囲にあるのがより好ましい。

【0014】かかる金属粉末を分散させ、金属粉末燃焼用バーナへと導入するためのキャリアーガスとして、空気、窒素、酸素、ヘリウム、アルゴンなどを使用することができ、これらのキャリアーガスのうちから、金属粉末の物性、使用する金属粉末燃焼用バーナの構造などによって適宜選択される。本発明においては、金属粉末燃焼用バーナによって可燃性ガスと初期支燃性ガスを爆発燃焼させて、着火用火炎を形成している。これらのガスのうち可燃性ガスが、金属粉末の粉塵爆発を安定して発生させるための着火源となる。可燃性ガスとして、化学式 C_nH_{2n+2} で表すことができるメタン、エタン、プロパンなどの炭化水素ガス、または、水素ガスを使用することができる。また、可燃性ガスは、金属粉末の初期粉塵爆発を発生させるのに必要な最小着火エネルギーを供給できればよいので、以下に述べる燃焼火炎中で金属粉末が連続的に酸化燃焼中に、常時、可燃性ガスを供給してもよいし、燃焼火炎が安定した後は可燃性ガスの供給を停止してもよい。なお、可燃性ガスの供給量は、製造される金属酸化物粉末の粒径に若干影響するので、その供給量は、製造される金属酸化物粉末に所望の粒径に応じて適宜設定する必要がある。

【0015】着火用火炎中に金属粉末を分散させたキャリアーガスが導入されると、初期支燃性ガスの作用によって、金属粉末燃焼用バーナ付近で初期火炎が形成される。この初期支燃性ガスとして、酸素、空気、および、これらの混合物を使用することができ、これらの初期支燃性ガスのうちから、金属粉末の物性、使用する金属粉末燃焼用バーナの構造、使用する燃焼炉の構造などによって適宜選択される。

【0016】このように形成された初期火炎が延長する方向に支燃性ガスを逐次的かつ多段階的に供給して、燃焼火炎を形成する。逐次的かつ多段階的に供給される支燃性ガスは、形成される燃焼火炎の温度を上昇ないし低下させる、または、形成される燃焼火炎の長さを延長ないし短縮させる。かかる作用をする支燃性ガスの供給を制御することによって、燃焼火炎を拡大または縮小し、製造される金属酸化物粉末の粒径を制御する。この支燃性ガスとして、前記した初期支燃性ガスと同様に、酸素、空気、および、これらの混合物を使用することができ、これらの支燃性ガスのうちから、金属粉末の物性、使用する金属粉末燃焼用バーナの構造、使用する燃焼炉

の構造などによって適宜選択される。

【0017】本発明においては、金属粉末、キャリアーガス、可燃性ガス、初期支燃性ガスおよび支燃性ガスは、通常室温で燃焼炉に供給される。しかし、燃焼火炎が1000°C以上の高温となることから、燃焼炉は、アルミナなどの耐熱性材料で内張りされているのが好ましい。さらに、燃焼炉の排出側に、金属酸化物粉末回収装置や排気ガス処理装置などを介して、排風機を設け、この排風機によって排気ガスを吸引し、製造された金属酸化物粉末を金属酸化物粉末回収装置に分離、回収する。この吸引の際の圧力は、-200から-10mmAqの負圧とするのが好ましい。

【0018】

【発明の作用】従来から、連続粉塵爆発の原理を応用した金属酸化物粉末の製造方法で製造される金属酸化物粉末の粒径は、金属およびその酸化物の融点、これらの溶融物の沸点や表面張力によって変化することが知られている。また、本発明者らの鋭意研究の結果によれば、製造される金属酸化物粉末の粒径は、①初期火炎中の金属粉末の濃度と不完全燃焼状態にある金属酸化物粉末の濃度、②形成された燃焼火炎の長さ、および、③燃焼火炎の温度などに、主として依存しているものと考えられる。

【0019】すなわち、初期火炎中の金属粉末の濃度と不完全燃焼状態にある金属酸化物粉末の濃度が高ければ高いほど、製造される金属酸化物粉末の粒径は拡大する。また、形成された燃焼火炎の長さが長ければ長いほど、製造される金属酸化物粉末の粒径は拡大する。また、燃焼火炎の温度が高ければ高いほど、製造される金*

* 属酸化物粉末の粒径は拡大する。なぜならば、以上の条件下においては、金属粉末同士、金属酸化物粉末同士または金属粉末と金属酸化物粉末の衝突頻度が増加し、燃焼火炎中の金属粉末や金属酸化物粉末の滞留時間が増加し、かつ、金属粉末と金属酸化物粉末の気化が抑制されるとともにそれらの合体が促進されるからである。以上の条件とは逆の場合、製造される金属酸化物粉末の粒径は当然に縮小する。

【0020】さらに、本発明者らの鋭意研究の結果によれば、製造される金属酸化物粉末の粒径は、金属粉末の供給量、可燃性ガスの供給量および支燃性ガスの供給量にも依存する。製造される金属酸化物粉末の粒径と、金属粉末の供給量、可燃性ガスの供給量および支燃性ガスの供給量との関係を下記の表1にまとめた。なお、金属粉末の供給量が化学量論量に近く、かつ、その供給量が多いほど、製造される金属酸化物粉末の粒径は拡大する。この逆の場合、製造される金属酸化物粉末の粒径は縮小する。しかし、従来の金属酸化物粉末の製造方法においては、使用する装置の構造などによる制約のため、金属粉末の供給量、可燃性ガスの供給量および支燃性ガスの供給量も制限されてしまう。このため、たとえば、製造されるシリカガラス粉末の粒径は、0.2から1.5 μmという狭い範囲でしか制御することはできなかった。また、たとえば、製造されるアルミナ粉末の粒径は、5から10 μmという比較的狭い範囲でしか制御することはできなかった。

【0021】

【表1】

金属酸化物粉末の粒径	縮小	拡大
金属粉末の供給量	少量	多量
可燃性ガスの供給量	多量	少量
支燃性ガスの供給量	多量	少量

しかし、本発明においては、金属粉末燃焼用バーナによって、可燃性ガスと初期支燃性ガスから着火用火炎を形成した後、金属粉末を分散させたキャリアーガスを着火用火炎中に導入し、金属粉末燃焼用バーナ付近で初期火炎を形成する。この後、本発明においては、初期火炎が延長する方向に支燃性ガスを逐次的かつ多段階的に供給して燃焼火炎を形成し、この支燃性ガスの供給を制御することによって、燃焼火炎を拡大または縮小し、製造される金属酸化物粉末の粒径を広い範囲にわたって、制御することを可能としている。

【0022】すなわち、本発明においては、初期火炎は燃料過剰状態なので、その中には液体状態であってかつ

不完全燃焼状態の金属酸化物粉末が、高濃度で存在する。そして、かかる初期火炎が延長する方向に支燃性ガスを逐次的かつ多段階的に供給すれば、燃焼火炎が拡大する。この結果、液体状態であってかつ不完全燃焼状態の金属酸化物粉末同士や金属粉末同士などの衝突頻度が増加し、燃焼火炎中のかかる金属酸化物粉末や金属粉末の滞留時間が増加し、かつ、かかる金属酸化物粉末や金属粉末の気化が抑制されるとともにその合体が促進される。この結果、製造される金属粉末の粒径が拡大する。また、かかる初期火炎が延長しない方向に支燃性ガスを逐次的かつ多段階的に供給すれば、燃焼火炎が縮小する。この結果、液体状態であってかつ不完全燃焼状態

の金属酸化物粉末同士や金属粉末同士などの衝突頻度が減少し、燃焼火炎中でのかかる金属酸化物粉末や金属粉末の滞留時間が減少し、かつ、かかる金属酸化物粉末や金属粉末の気化が促進されるとともにその合体が抑制される。この結果、製造される金属粉末の粒径が縮小する。

【0023】なお、初期火炎が延長する方向に支燃性ガスを供給するには、支燃性ガスを燃焼火炎との干渉をできるだけ避けるようにすればよい。たとえば、支燃性ガスを燃焼火炎と平行に逐次的かつ多段階的に供給する。このようにすれば、金属粉末が徐々に燃焼するので燃焼火炎を延長でき、燃焼火炎の温度も低下する。この結果、製造される金属粉末の粒径が拡大する。また、初期火炎が延長しない方向に支燃性ガスを供給するには、支燃性ガスを燃焼火炎との干渉をできるだけ助長するようすればよい。たとえば、支燃性ガスを燃焼火炎と垂直に逐次的かつ多段階的に供給する。このようにすれば、金属粉末が速やかに燃焼するので燃焼火炎を短縮でき、燃焼火炎の温度も上昇する。この結果、製造される金属粉末の粒径が縮小する。さらに、前記したような燃焼火炎との干渉をできるだけ避けるような支燃性ガスの供給方法と、燃焼火炎との干渉をできるだけ助長するような支燃性ガスの供給方法との、中間的な方法で、支燃性ガスを逐次的かつ多段階的に供給すれば、製造される金属粉末の粒径が、前記した二つの支燃性ガス供給方法で得られる二つの粒径の中間的な粒径とすることができます。

【0024】

【実施例】本発明の実施例を、以下、図面を参照しながら説明する。まず、本発明の実施例で使用した金属酸化物粉末の製造装置につき説明する。図1に示すように、この製造装置は、金属粉末M/Pを供給するためのホッパ1と、ホッパ1の下部に接続された、金属粉末M/Pを分散させたキャリアーガスを着火用火炎（図示せず。）中に導入するための導入管2と、可燃性ガスを供給するための供給管3と、初期支燃性ガスを供給するための供給管4と、導入管2の排気端、供給管3の排気端および供給管4の排気端が接続された金属粉末燃焼用バーナ5と、金属粉末燃焼用バーナ5の下部に接続された燃焼炉6と、その吸気端が燃焼炉6の下部に接続された排気管7と、排気管7を介して燃焼炉6に接続された金属酸化物粉末回収装置8と、接続管9を介して金属酸化物粉末回収装置8と接続された排気ガス処理装置10と、接続管11を介して排気ガス処理装置10と接続された排風機12と、からなる。

【0025】燃焼炉6につき、図2を参照しながらさらに詳しく説明する。燃焼炉6は、円筒状をなしている。その周壁部には、上から、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62、第3次支燃性ガス供給装置63、第4次支燃性ガス供給装置64および第5次支燃性ガス供給装置65が、燃焼炉6の周壁部の内周面には、100

0°C以上の高温に耐えるアルミナ煉瓦からなる内張り66を施してある。

5次支燃性ガス供給装置65が、金属酸化物粉末の製造時に形成される初期火炎I/Fと燃焼火炎C/Fの周囲を取り囲むように配設されている。このように、以下で説明する実施例においては、支燃性ガス供給装置を五段階に配設したが、支燃性ガス供給装置はこれ以上、または、これ以下の多段階に配設してもよい。第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62、第3次支燃性ガス供給装置63、第4次支燃性ガス供給装置64および第5次支燃性ガス供給装置65は、それぞれ、第1次支燃性ガス供給管61a、第2次支燃性ガス供給管62a、第3次支燃性ガス供給管63a、第4次支燃性ガス供給管64aおよび第5次支燃性ガス供給管65aを介して、図示しない支燃性ガス供給源と接続している。なお、燃焼炉6の周壁部の内周面には、100

0°C以上の高温に耐えるアルミナ煉瓦からなる内張り66を施してある。

（第1実施例）このように構成した金属酸化物粉末の製造装置を用いて、シリカガラス粉末を以下のように製造した。まず、可燃性ガス供給管3と初期支燃性ガス供給管4を開き、可燃性ガスとして液化石油ガス（以下、LPGという。）を、初期支燃性ガスとして酸素を、それぞれ、3.0Nm³/hr、10.0Nm³/hrなる流量で、金属粉末燃焼用バーナ5に供給し、金属粉末燃焼用バーナ5によって図示しない着火用火炎を形成した。つぎに、ホッパ1を開き、30.0kg/hrなる割合で平均粒径20.0μmの金属珪素粉末M/Pを、空気からなるキャリアーガス中に分散させた。なお、キャリアーガスは、6.0Nm³/hrなる流量で供給した。そして、かかる金属珪素粉末M/Pを分散させたキャリアーガスを、導入管2を介して、金属粉末燃焼用バーナ5に導入し、金属粉末燃焼用バーナ5によって初期火炎I/Fを形成した。

【0026】初期火炎I/Fを形成したのち、図2に示すように、第1次支燃性ガス供給管61a、第2次支燃性ガス供給管62aおよび第3次支燃性ガス供給管63aを開き、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62および第3次支燃性ガス供給装置63に、第1次支燃性ガス、第2次支燃性ガスおよび第3次支燃性ガスを導入した後、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62および第3次支燃性ガス供給装置63を起動し、所定の第1次支燃性ガス、第2次支燃性ガスおよび第3次支燃性ガスを所定流量で燃焼炉6内に供給し、燃焼火炎C/Fを形成した。

【0027】以上の操作において、第1次支燃性ガス、第2次支燃性ガスおよび第3次支燃性ガスは、それぞれ、酸素、酸素および空気からなり、それぞれ、40.0Nm³/hr、60.0Nm³/hr、80.0Nm³/hrなる流量で燃焼炉6内に供給した。なお、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62および第3次支燃性ガス供給装置63は、第1次支

燃性ガス、第2次支燃性ガスおよび第3次支燃性ガスを、それぞれ、形成しようとする燃焼火炎C/Fの縦軸または燃焼炉6の中心軸に対して、俯角45度、垂直および俯角45度で供給するように調整しておいた。表2に、燃焼火炎C/Fの形成時における第1次支燃性ガス*

*供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62および第3次支燃性ガス供給装置63の運転条件をまとめた。

【0028】

【表2】

支燃性ガス供給装置	支燃性ガスの種類	支燃性ガスの供給量*	支燃性ガスの供給方向
第1次支燃性ガス供給装置61	酸素	40.0	俯角45度
第2次支燃性ガス供給装置62	酸素	60.0	垂直
第3次支燃性ガス供給装置63	空気	80.0	俯角45度
第4次支燃性ガス供給装置64	起動せず		
第5次支燃性ガス供給装置65	起動せず		

*単位: Nm^3/h r

以上のように形成した燃焼火炎C/Fによって金属珪素粉末M/Pを連続的に酸化燃焼させた結果、含塵排気ガスが発生した。排風機12を起動して、燃焼炉6から図1に示す製造装置の外部へ、排気管7、金属酸化物粉末回収装置8、接続管9、排気ガス処理装置10と接続管11を介して、発生した排気ガスを排出した。1時間後、金属珪素粉末M/Pの供給を停止し、金属酸化物粉末回収装置8のバッグフィルタ上に分離されたシリカガラス粉末を54.5 kg回収した。以上の工程を経て製造されたシリカガラス粉末の平均粒径は、0.04 μm であった。なお、このシリカガラス粉末は未燃焼物を含まず、その粒径分布はシャープであった。また、透過電子顕微鏡（以下、TEMという。）による観察によって、このシリカガラス粉末の形状は、真球状であることを確認した。

（比較例1）第1実施例で用いた金属酸化物粉末の製造装置と同一の製造装置を用いて、シリカガラス粉末を第1実施例とほぼ同様に製造した。ただし、①可燃性ガスとしてLPGを、初期支燃性ガスとして酸素を、それぞれ、3.0 Nm^3/h r、90.0 Nm^3/h rなる流量で、金属粉末燃焼用バーナ5に供給したこと、②空気からなるキャリアーガスを、6.5 Nm^3/h rなる流量で供給したこと、および、③全ての支燃性ガス供給装置、すなわち、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62、第3次支燃性ガス供給装置63、第4次支燃性ガス供給装置64および第5次支燃性ガス供給装置65を、全く運転しなかったこと、以上三つの条件を第1実施例のそれとは異なる条件として、シリカガラス粉末を製造した。

【0029】以上のような製造条件下で、金属珪素粉末

M/Pを連続的に酸化燃焼させた結果、シリカガラス粉末を53.7 kg回収した。以上の工程を経て製造されたシリカガラス粉末の平均粒径は、0.20 μm であった。これは、第1実施例によって製造されたシリカガラス粉末の平均粒径の5倍に拡大したものであった。このように平均粒径が拡大したのは、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62および第3次支燃性ガス供給装置63を、第1実施例におけるそれのように、運転しなかったことに起因するものであることは明らかである。なお、このシリカガラス粉末の粒径分布は、シャープであること、かつ、TEMによる観察によって、このシリカガラス粉末の形状は、真球状であることを確認した。しかし、このシリカガラス粉末は未燃焼物を多量に含み、半導体封止材などの原料として好みなものではなかった。

（第2実施例）第1実施例で用いた金属酸化物粉末の製造装置と同一の製造装置を用いて、シリカガラス粉末を第1実施例とほぼ同様に製造した。ただし、①可燃性ガスとしてLPGを、初期支燃性ガスとして酸素を、それぞれ、0.2 Nm^3/h r、10.0 Nm^3/h rなる流量で、金属粉末燃焼用バーナ5に供給したこと、②50.0 kg/hrなる割合で平均粒径20.0 μm の金属珪素粉末M/Pを、空気からなるキャリアーガス中に分散させたこと、③空気からなるキャリアーガスを、7.0 Nm^3/h rなる流量で供給したこと、および、④全ての支燃性ガス供給装置、すなわち、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62、第3次支燃性ガス供給装置63、第4次支燃性ガス供給装置64および第5次支燃性ガス供給装置65を、表3にまとめるように運転したこと、以上四つの条件を第1実

施例のそれとは異なる条件として、シリカガラス粉末を
製造した。 * 【0030】

* 【表3】

支燃性ガス供給装置	支燃性ガスの種類	支燃性ガスの供給量*	支燃性ガスの供給方向
第1次支燃性ガス供給装置61	酸素	10.0	俯角45度
第2次支燃性ガス供給装置62	酸素	10.0	平行
第3次支燃性ガス供給装置63	酸素	10.0	平行
第4次支燃性ガス供給装置64	酸素	10.0	俯角45度
第5次支燃性ガス供給装置65	酸素	10.0	俯角45度

*単位: $Nm^3/h r$

以上のような製造条件下で、金属珪素粉末M/Pを連続的に酸化燃焼させた結果、シリカガラス粉末を57.8 kg回収した。以上の工程を経て製造されたシリカガラス粉末の平均粒径は、4.50 μm であった。なお、このシリカガラス粉末は未燃焼物を含まず、その粒径分布は、1 μm と5 μm に二つのピークをもつものであった。また、TEMによる観察によって、このシリカガラス粉末の形状は、真球状であることを確認した。

(比較例2) 第1実施例で用いた金属酸化物粉末の製造装置と同一の製造装置を用いて、シリカガラス粉末を第1実施例とほぼ同様に製造した。ただし、①可燃性ガスとしてLPGを、初期支燃性ガスとして酸素を、それぞれ、0.2 $Nm^3/h r$ 、50.0 $Nm^3/h r$ なる流量で、金属粉末燃焼用バーナ5に供給したこと、②50.0 kg/h rなる割合で平均粒径20.0 μm の金属珪素粉末M/Pを、空気からなるキャリアーガス中に分散させたこと、③空気からなるキャリアーガスを、7.0 $Nm^3/h r$ なる流量で供給したこと、および、④全ての支燃性ガス供給装置、すなわち、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62、第3次支燃性ガス供給装置63、第4次支燃性ガス供給装置64および第5次支燃性ガス供給装置65を、全く運転しなかったこと、以上四つの条件を第1実施例のそれとは異なる条件として、シリカガラス粉末を製造した。

【0031】以上のような製造条件下で、金属珪素粉末M/Pを連続的に酸化燃焼させた結果、シリカガラス粉末を57.0 kg回収した。以上の工程を経て製造されたシリカガラス粉末の平均粒径は、2.0 μm であった。これは、第2実施例によって製造されたシリカガラ

ス粉末の平均粒径の4/9に縮小したものであった。このように平均粒径が縮小したのは、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62、第3次支燃性ガス供給装置63、第4次支燃性ガス供給装置64および第5次支燃性ガス供給装置65を、第2実施例におけるそれのように、運転しなかったことに起因するものであることは明らかである。

【0032】なお、このシリカガラス粉末は未燃焼物を多量に含み、半導体封止材などの原料として好ましいものではなかった。

(第3実施例) 第1実施例で用いた金属酸化物粉末の製造装置と同一の製造装置を用いて、アルミナ粉末を第1実施例とほぼ同様に製造した。ただし、①可燃性ガスとしてLPGを、初期支燃性ガスとして酸素を、それぞれ、2.0 $Nm^3/h r$ 、40.0 $Nm^3/h r$ なる流量で、金属粉末燃焼用バーナ5に供給したこと、②20.0 kg/h rなる割合で平均粒径20.0 μm の金属アルミニウム粉末M/Pを、窒素からなるキャリアーガス中に分散させたこと、および、③窒素からなるキャリアーガスを、6.0 $Nm^3/h r$ なる流量で供給したこと、以上三つの条件を第1実施例のそれとは異なる条件として、アルミナ粉末を製造した。なお、第1次支燃性ガス供給装置61、第2次支燃性ガス供給装置62および第3次支燃性ガス供給装置63を、表4にまとめるように、第1実施例のそれらの運転条件と同一の条件下で運転した。

【0033】

【表4】

支燃性ガス供給装置	支燃性ガスの種類	支燃性ガスの供給量*	支燃性ガスの供給方向
第1次支燃性ガス供給装置6 1	酸素	40. 0	偏角45度
第2次支燃性ガス供給装置6 2	酸素	60. 0	垂直
第3次支燃性ガス供給装置6 3	空気	80. 0	偏角45度
第4次支燃性ガス供給装置6 4		起動せず	
第5次支燃性ガス供給装置6 5		起動せず	

*単位: Nm^3 / hr

以上のような製造条件下で、金属アルミニウム粉末M/Pを連続的に酸化燃焼させた結果、アルミナ粉末を34.0 kg回収した。以上の工程を経て製造されたアルミナ粉末の平均粒径は、0.20 μm であった。なお、このアルミナ粉末は未燃焼物を含まず、その粒径分布はシャープであった。また、TEMによる観察によって、このアルミナ粉末の形状は、真球状であることを確認した。

(第4実施例) 第1実施例で用いた金属酸化物粉末の製造装置と同一の製造装置を用いて、アルミナ粉末を第1実施例とほぼ同様に製造した。ただし、①可燃性ガスとしてLPGを、初期支燃性ガスとして酸素を、それぞれ、0.4 Nm^3 / hr 、15.0 Nm^3 / hr なる流量で、金属粉末燃焼用バーナ5に供給したこと、②2*

*0.0 kg/hrなる割合で平均粒径40.0 μm の金属アルミニウム粉末M/Pを、窒素からなるキャリアーガス中に分散させたこと、③窒素からなるキャリアーガスを、6.0 Nm^3 / hr なる流量で供給したこと、および、④全ての支燃性ガス供給装置、すなわち、第1次支燃性ガス供給装置6 1、第2次支燃性ガス供給装置6 2、第3次支燃性ガス供給装置6 3、第4次支燃性ガス供給装置6 4および第5次支燃性ガス供給装置6 5を、表5にまとめるように運転したこと、以上四つの条件を第1実施例のそれとは異なる条件として、アルミナ粉末を製造した。

【0034】

【表5】

支燃性ガス供給装置	支燃性ガスの種類	支燃性ガスの供給量*	支燃性ガスの供給方向
第1次支燃性ガス供給装置6 1	酸素	10. 0	偏角45度
第2次支燃性ガス供給装置6 2	酸素	10. 0	偏角45度
第3次支燃性ガス供給装置6 3	酸素	10. 0	偏角45度
第4次支燃性ガス供給装置6 4	酸素	10. 0	偏角45度
第5次支燃性ガス供給装置6 5	酸素	10. 0	偏角45度

*単位: Nm^3 / hr

以上のような製造条件下で、金属アルミニウム粉末M/Pを連続的に酸化燃焼させた結果、アルミナ粉末を32.5 kg回収した。以上の工程を経て製造されたアルミナ粉末の平均粒径は、18.5 μm であった。なお、このアルミナ粉末は未燃焼物を含まず、その粒径分布は、0.8 μm と15 μm に二つのピークをもつもので

あった。また、TEMによる観察によって、このアルミナ粉末の形状は、真球状であることを確認した。

【0035】

【発明の効果】以上詳述したように、本発明においては、金属粉末燃焼用バーナによって、可燃性ガスと初期支燃性ガスから着火用火炎を形成した後、金属粉末を分

散させたキャリアーガスを着火用火炎中に導入し、金属粉末燃焼用バーナ付近で初期火炎を形成する。この後、本発明においては、初期火炎が延長する方向に支燃性ガスを逐次的かつ多段階的に供給して燃焼火炎を形成し、この支燃性ガスの供給を制御することによって、燃焼火炎を拡大または縮小し、製造される金属酸化物粉末の粒径を広い範囲にわたって、制御することを可能としている。

【0036】したがって、本発明によれば、金属粉末の供給量、可燃性ガスの供給量および支燃性ガスの供給量などの制御、金属粉末燃焼用バーナの構造を大幅に改造することなく、さらに、炭素繊維などの異物を混入させ易い冷却水などの供給を行うことなく、製造される金属酸化物粉末の粒径を広い範囲にわたって、単一の方法または装置で、拡大および縮小することができる。すなわち、本発明は、従来の設備空間、生産時間および生産性に、影響を与えることなく、製造される金属酸化物粉末の粒径を広い範囲にわたって制御することができるので、非常に有利である。

【0037】また、本発明は、従来の技術と同様に、連続粉塵爆発の原理を応用した金属酸化物の製造方法であり、大気圧下で実施することができるので、単純な製造工程で短時間に大量の金属酸化物粉末を製造することができ、装置を簡素化でき、かつ、初期費用および運転費用を節約することができる。さらに、本発明によるシリカガラス粉末の製造においては、製造されるシリカガラス粉末の粒径を、0.02から5.0 μm という広い範囲にわたって制御することができる。また、本発明によるアルミナ粉末の製造においては、製造されるアルミナ粉末の粒径を、0.2から20.0 μm という広い範囲

10

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の金属酸化物粉末の製造方法の実施例で使用した金属酸化物粉末の製造装置のブロック図である。

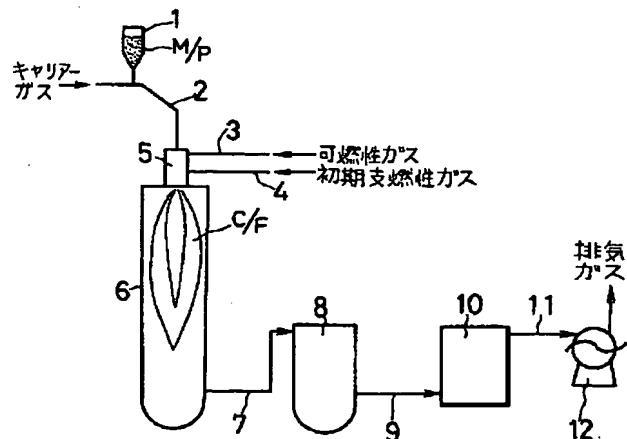
【図2】本発明の金属酸化物粉末の製造方法の実施例で使用した金属酸化物粉末の製造装置の燃焼炉の模式的な断面図である。

【符号の説明】

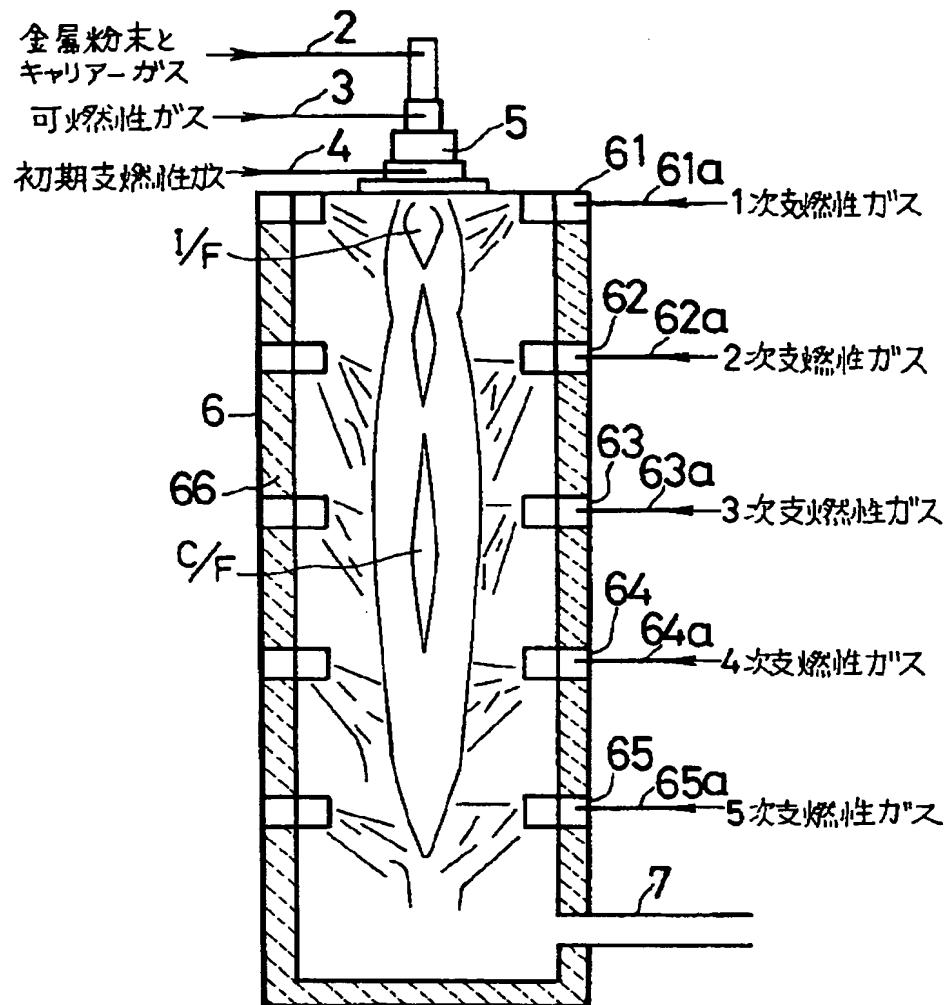
1：ホッパ 1、2：導入管、3：可燃性ガス供給管、

4：初期支燃性ガス供給管、5：金属粉末燃焼用バーナ、6：燃焼炉、6 1：第1次支燃性ガス供給装置、6 2：第2次支燃性ガス供給装置、6 3：第3次支燃性ガス供給装置、6 4：第4次支燃性ガス供給装置、6 5：第5次支燃性ガス供給装置 6 1 a：第1次支燃性ガス供給管、6 2 a：第2次支燃性ガス供給管、6 3 a：第3次支燃性ガス供給管、6 4 a：第4次支燃性ガス供給管、6 5 a：第5次支燃性ガス供給管、6 6：内張り、7：排気管、8：金属酸化物粉末回収装置、9：接続管、10：排気ガス処理装置、11：接続管、12：排風機、M/P：金属粉末、I/F：初期火炎、C/F：燃焼火炎

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 安部 賢
東京都新宿区西新宿1丁目22番地2号 株
式会社アドマテックス内